

Анизотропия прыжкового магнитосопротивления антиферромагнитных монокристаллов $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$

Б.И. Белевцев¹, Н.В. Далакова¹, А. В. Бондаренко², А.С. Панфилов¹,
И.С. Брауде¹

¹Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины
пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина
E-mail: belevtsev@ilt.kharkov.ua

²Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина
пл. Свободы, 4, г. Харьков, 61077, Украина

Статья поступила в редакцию 4 октября 2002 г.

Представлены результаты исследования анизотропии прыжковой проводимости в интервале 5–295 К и магнитосопротивления (МС) в интервале 5–55 К антиферромагнитных монокристаллов $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ с $T_N \approx 188$ К. Сопротивление измерено по методу Монтгомери при различных сочетаниях направлений транспортного тока и магнитного поля относительно кристаллографических осей. Для случая, когда поле и транспортный ток направлены параллельно слоям CuO_2 , при повышении температуры до $T \approx 20$ К обнаружен переход от отрицательного к положительному МС. Для полей, перпендикулярных слоям CuO_2 , наблюдали только отрицательное МС. Проведено обсуждение природы обнаруженного положительного МС. Показано, что этот эффект связан, скорее всего, не с взаимодействием спина носителей заряда с окружающей магнитной средой, а с орбитальным движением этих носителей. Найдено соответствие величины, а также магнитопольового и температурного поведения положительного МС с известной моделью Шкловского и Эфроса, основанной на учёте сжатия примесных волновых функций носителей заряда в магнитном поле.

Представлено результати дослідження анізотропії стрибкової провідності в інтервалі температур 5–295 К та магнітоопору (МО) в інтервалі 5–55 К антиферромагнітних монокристалів $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ з $T_N \approx 188$ К. Опір виміряно за методом Монтгомері при різних комбінаціях напрямів транспортного струму та магнітного поля щодо кристаллографічних осей. Для випадку, коли поле та транспортний струм направлені паралельно до шарів CuO_2 , при підвищенні температури до $T \approx 20$ К виявлено перехід від негативного до позитивного МО. Для полів, перпендикулярних до шарів CuO_2 , спостерігали тільки негативний МО. Проведено обговорення природи виявленого позитивного МО. Показано, що цей ефект пов'язано, скоріше за все, не з взаємодією спіну носіїв заряду з оточуючим магнітним середовищем, а з орбітальним рухом цих носіїв. Знайдено відповідність величини, а також магнітопольової та температурної поведінки позитивного МО з відомою моделлю Шкловського та Ефроса, що базується на урахуванні стиску домішкових хвильових функцій носіїв заряду в магнітному полі.

PACS: 74.72.Dn; 72.20.Mu; 75.50.Ee; 75.50.Pp

1. Введение

Уникальные магнитные и проводящие свойства окислов $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ с избытком кислорода привлекают значительное внимание в течение последних 15 лет после открытия высокотемпературной сверхпроводимости в перовскитных оксидах меди. Сте-

хиометрический окисел La_2CuO_4 ($\delta = 0$) является антиферромагнитным (АФ) диэлектриком с температурой Нееля (T_N) около 300–320 К [1,2,3]. Насыщение избыточным кислородом ($\delta > 0$) приводит к возникновению носителей заряда (кислородных дырок) и подавлению АФ порядка (понижению T_N).

При достаточно большой величине δ ($> 0,05$) система становится металлом и сверхпроводником (ниже 35–40 К). Кристаллическая решетка $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ относится к семейству решеток слоистых перовскитов. При $T < 530$ К решетка является орторомбической. В группе симметрии $Bmab$ ось \mathbf{c} перпендикулярна слоям CuO_2 , а оси \mathbf{a} и \mathbf{b} параллельны им [3]. Избыточный кислород находится в междоузлиях между слоями CuO_2 . Проводимость системы определяется дырками в слоях CuO_2 , а магнитное состояние — спином ионов меди Cu^{2+} ($S = 1/2$). При достаточно малой величине δ (т.е. в диэлектрическом состоянии) в слоях CuO_2 наблюдается АФ упорядочение. Магнитное взаимодействие между слоями является весьма слабым. Установлено, что в слоях CuO_2 происходит поворот всех спинов относительно плоскости слоя на малый угол ($\approx 0,17^\circ$) [1]. Поэтому слои CuO_2 обладают небольшими ферромагнитными моментами, которые испытывают АФ упорядочение в направлении, перпендикулярном слоям, при $T < T_N$ [1].

Для слоистых перовскитных соединений можно ожидать: 1) квазидвумерного поведения проводимости (в том числе и прыжковой); 2) существенной анизотропии проводимости для направлений, перпендикулярных и параллельных плоскостям CuO_2 . Первое из этих предположений не подтвердилось на опыте. Для диэлектрических кристаллов $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ при достаточно низких температурах была обнаружена [4,5] температурная зависимость сопротивления

$$R(T) \propto \exp [(T_0/T)^{1/4}], \quad (1)$$

соответствующая трехмерному случаю прыжковой проводимости с переменной длиной прыжка (ПППДП). Это означает, что носители заряда совершают прыжки не только в пределах слоев CuO_2 , но и между ними. Наряду с этим была обнаружена значительная анизотропия прыжковой проводимости в образцах достаточно хорошего качества [2,6]: проводимость (σ_{ab}) в направлении, параллельном слоям CuO_2 , на один-два порядка величины превышает проводимость (σ_c) в направлении, перпендикулярном этим слоям.

Известные исследования магнитосопротивления (МС) $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ в режиме прыжковой проводимости нельзя считать исчерпывающими [1,7,8]. Для ПППДП следует ожидать положительного МС [9]. Однако для $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ наблюдали только отрицательное МС. Достаточно подробно исследован случай, когда магнитное поле \mathbf{H} и транспортный ток \mathbf{J} перпендикулярны слоям CuO_2 (т.е. $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ и $\mathbf{J} \parallel \mathbf{c}$). В таких условиях наблюдается довольно резкое уменьшение сопротивления в окрестности характерных полей H_c , зависящих от температуры [1,7,8]. При этом для полей, далеких по величине от H_c , величина

на МС или пренебрежимо мала (при $H \ll H_c$), или же имеет довольно высокое постоянное значение (при $H \gg H_c$). Величина H_c является максимальной (около 50 кЭ) при $T \rightarrow 0$. При повышении температуры величина H_c уменьшается, причём особенно быстро вблизи T_N . Описываемый эффект отсутствует выше T_N . Все это свидетельствует о том, что магниторезистивный эффект в этом случае связан с изменениями магнитного состояния $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ под влиянием внешнего поля. Действительно, было показано [1,10], что достаточно сильное магнитное поле приводит к переходу $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ из АФ в слабоферромагнитное (СФ) состояние, в котором ферромагнитные моменты слоев CuO_2 параллельны. Возможные модели МС, связанные с этим переходом, рассмотрены в [7,10].

Весьма скудные и отчасти противоречивые сведения имеются о поведении МС для других сочетаний направлений магнитного поля и транспортного тока. В работе [1] найдено, что МС близко к нулю для полей, параллельных слоям CuO_2 (т.е. при $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$), при $T > 20$ К (для транспортных токов как параллельных, так и перпендикулярных слоям CuO_2). В то же время в работе [7] было обнаружено довольно значительное отрицательное МС при $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$ (для токов, перпендикулярных слоям CuO_2), что можно связать со спин-флоп переходом при довольно высоких полях ($H > 100$ кЭ) [7,10]. Так как спин-флоп переход при повышении поля, параллельного слоям CuO_2 , происходит плавно (без скачка МС в переходе), заметное влияние его на МС можно наблюдать уже в полях менее 50 кЭ [7]. Отметим, что в известных из литературы исследованиях всегда наблюдали только отрицательное МС и для объяснения его привлекали только спиновые механизмы прыжкового МС [10]. В целом можно утверждать, что особенности и механизмы МС кристаллов $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ в области прыжковой проводимости изучены недостаточно подробно, поэтому дальнейшие исследования представляются необходимыми и актуальными.

В настоящей работе представлены результаты исследования анизотропии прыжковой проводимости и МС монокристаллов $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$. Образцы были антиферромагнитными с $T_N \approx 188$ К. Проводимость в нулевом магнитном поле измеряли в интервале 5–295 К, а МС — в интервале 5–55 К. МС было измерено при различных сочетаниях направлений магнитного поля и транспортного тока относительно главных кристаллографических осей. Для случая, когда как поле, так и транспортный ток направлены параллельно слоям CuO_2 , обнаружен переход от отрицательного к положительному МС при повышении температуры. Для полей, перпендикулярных слоям CuO_2 , наблюдали только отрицательное МС.

В известной литературе о положительном МС кристаллов $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ в АФ состоянии ранее не сообщалось. Полученные результаты дают возможность предположить, что этот эффект обусловлен не спиновыми, а орбитальными процессами (сжатием волновых функций носителей заряда в магнитном поле в соответствии с моделью [9]).

2. Образцы и методика эксперимента

Исходным материалом для приготовления образцов был монокристалл $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ (с $T_N \approx 230$ К), проводящие свойства которого описаны в работе [5]. Из него вырезали два образца в форме параллелепипеда размерами $1,3 \times 0,3 \times 0,39$ мм (образец №1) и $0,75 \times 0,3 \times 0,29$ мм (образец №2). Кристаллографическая ориентация образцов была определена посредством рентгеновского исследования. Образцы подвергали длительному гомогенизирующему отжигу в атмосфере кислорода (400 °С, 7 суток). В результате отжига содержание кислорода несколько увеличилось, так что удельное сопротивление образцов ρ уменьшилось примерно на два порядка величины, а температура T_N (определенная из измерений температурной зависимости магнитной восприимчивости) снизилась до 188 К. При этом образцы остались в диэлектрическом состоянии и обладали прыжковой проводимостью. Измерения показали, что у этих двух образцов практически одинаковые резистивные и магниторезистивные характеристики. Сопротивление измеряли методом Монтгомери [11], который позволяет более надежно изучать анизотропию проводимости, чем обычный четырехконтактный метод. Контакты между измерительными проволочками и образцами создавали с помощью проводящей серебряной пасты с последующим отжигом образцов с контактами при повышенных температурах. Использовали следующие направления измерительного тока: $\mathbf{J} \parallel \mathbf{a}$ и $\mathbf{J} \parallel \mathbf{c}$ (образец №1) и $\mathbf{J} \parallel \mathbf{a}$ и $\mathbf{J} \parallel \mathbf{b}$ (образец №2). Магнитные поля были направлены параллельно оси \mathbf{b} или \mathbf{c} и всегда перпендикулярны току.

3. Результаты и обсуждение

Температурные зависимости $\rho(T)$ образца №1 (в условиях выполнения закона Ома) показаны на рис. 1 для разных направлений измерительных токов относительно кристаллографических осей. Видно, что при $T \geq 20$ К имеет место закон Мотта для ПППДП, т.е. выполняется (1). Каких-либо заметных изменений поведения $\rho(T)$ вблизи температуры Нееля (188 К) обнаружено не было. Зависимости $\rho(T)$ оказались (как и следовало ожидать) сильно анизотропными, т.е. величины ρ_c в направлении,

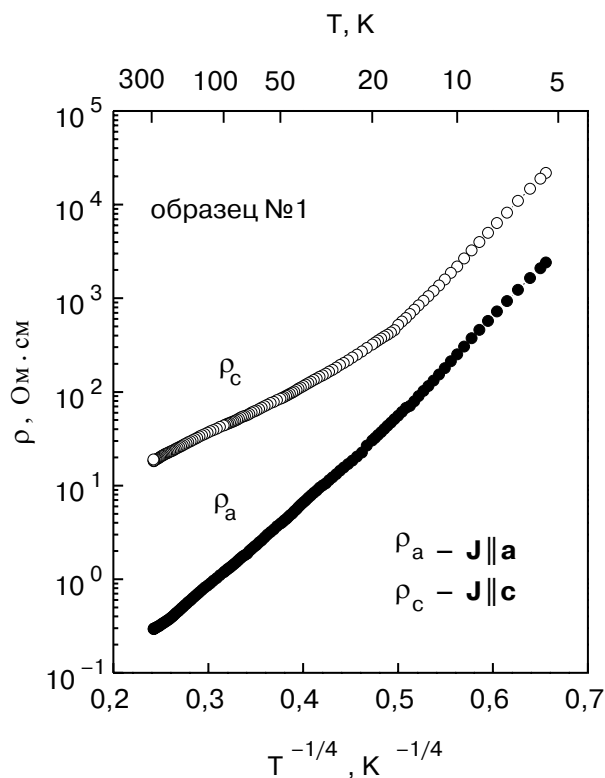


Рис. 1. Анизотропия прыжковой проводимости кристалла $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$. Измерения удельных сопротивлений ρ_a и ρ_c проведены для направлений измерительного тока (100 мкА) вдоль кристаллографических осей \mathbf{a} и \mathbf{c} .

перпендикулярном слоям CuO_2 , намного превышают значения ρ_a в направлении, параллельном этим слоям (рис. 1). В исследованном интервале температур (5–295 К) анизотропия сопротивления минимальна в области гелиевых температур, где $\rho_c/\rho_a \approx 10$ (рис. 2). При повышении температуры величина ρ_c/ρ_a увеличивается и достигает значения ≈ 62 при $T \approx 20$ К. Дальнейшее повышение температуры вплоть до комнатной уже не приводит к какому-либо существенному изменению величины ρ_c/ρ_a (рис. 2). Большие значения ρ_c/ρ_a свидетельствуют о значительном кристаллическом совершенстве изученных образцов. В нашем исследовании мы не обнаружили сильной анизотропии ρ в плоскостях кристалла, параллельных слоям CuO_2 (рис. 3), что обусловлено, прежде всего, неизбежным наличием двойников в кристаллах $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$.

При $T < 20$ К наблюдали отклонение от закона Мотта. Этот эффект исследован ранее [5], его связывают с явлением фазового разделения (ФР) в кристаллах $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ [12]. При достаточно низких температурах ФР обуславливает наличие сверхпроводящих включений малого размера в диэлектрической матрице. Это приводит к отклонению от закона Мотта и появлению отрицательного МС, увеличивающегося при понижении температуры (см. [5]).

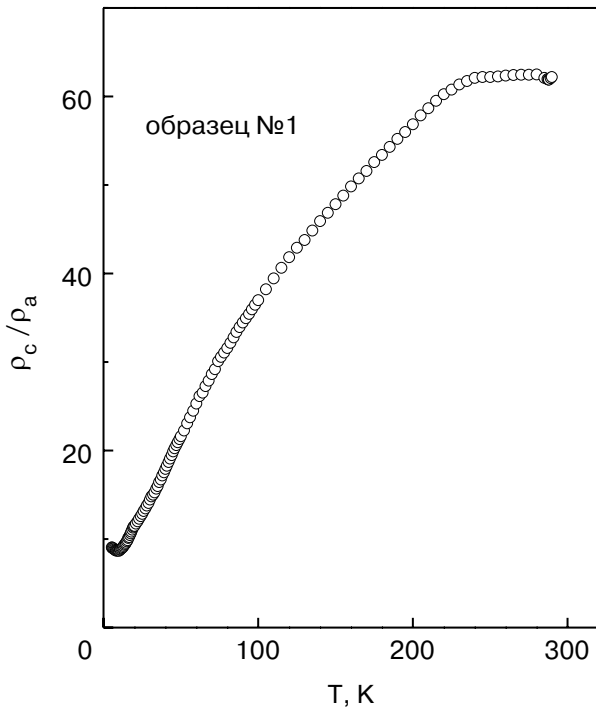


Рис. 2. Температурная зависимость отношения удельных сопротивлений ρ_a и ρ_c , полученных при измерительных токах, направленных вдоль кристаллографических осей **a** и **c**.

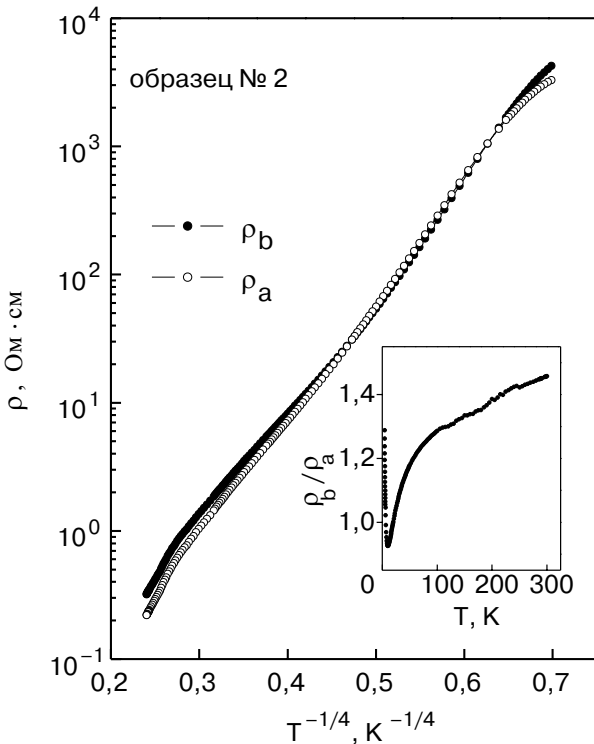


Рис. 3. Температурная зависимость удельных сопротивлений ρ_a и ρ_b , измеренных вдоль кристаллографических осей **a** и **b**, лежащих в плоскостях CuO_2 . На вставке показана температурная зависимость отношения этих сопротивлений.

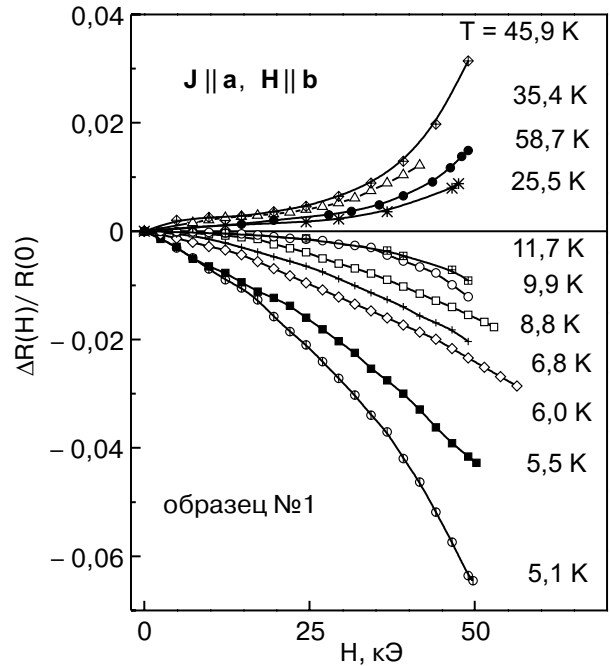


Рис. 4. Полевые зависимости МС при разных температурах при измерительном токе, параллельном слоям CuO_2 . Магнитное поле направлено параллельно этим слоям вдоль кристаллографической оси **b**.

Измерения показали, что не только величина, но и знак МС зависят от направления транспортного тока относительно слоёв CuO_2 . На рисунках 4–6 приведены данные о поведении МС в полях, параллельных слоям CuO_2 . При токе, параллельном слоям CuO_2 , наблюдается переход от отрицательного к положительному МС при повышении температуры. Переход происходит вблизи $T \approx 18$ К (рис. 5). В то же время при токе, перпендикулярном слоям CuO_2 , наблюдается только отрицательное МС, величина которого монотонно увеличивается при понижении температуры (рис. 6). В случае, когда и ток, и поле перпендикулярны слоям CuO_2 , обнаружено ожидаемое поведение МС, обусловленное переходом АФ – СФ [1,7,8].

Кривые $R(H, T)$, представленные на рис. 4–6, демонстрируют зависимость величины и знака МС от направления транспортного тока при одинаковом направлении магнитного (вдоль слоёв CuO_2) поля. Эти результаты являются новыми. В частности, положительное МС кристаллов $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ в режиме ПППДП обнаружено впервые. Кривые на рис. 4 отражают конкуренцию, по крайней мере, двух механизмов МС разного знака. Ниже $T \approx 20$ К преобладает отрицательное МС, обусловленное свойственным $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ эффектом ФР, т.е. разделения системы на области, обогащенные и обедненные носителями заряда (дырками) [12]. Области, обогащенные дырками, при малой величине δ представ-

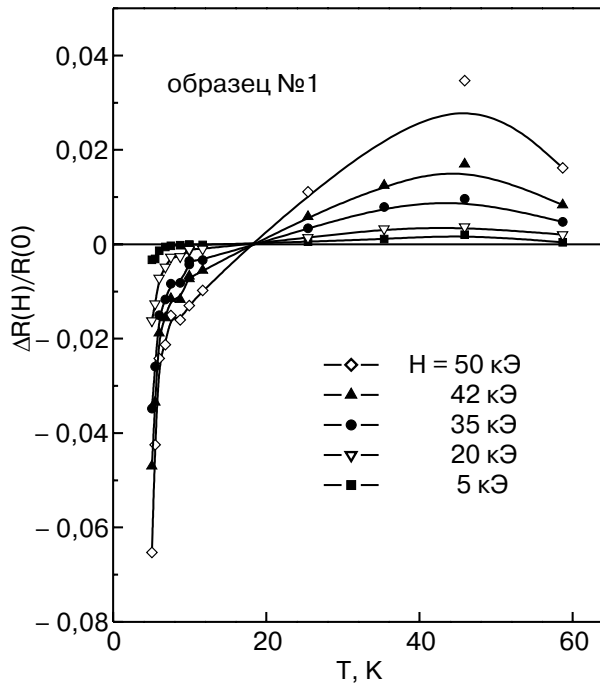


Рис. 5. Изменение знака МС при повышении температуры при измерительном токе, параллельном слоям CuO_2 . Магнитное поле направлено параллельно этим слоям вдоль кристаллографической оси **b**.

ляют собой изолированные металлические включения в диэлектрической матрице. При достаточно высоких температурах присутствие этих включений

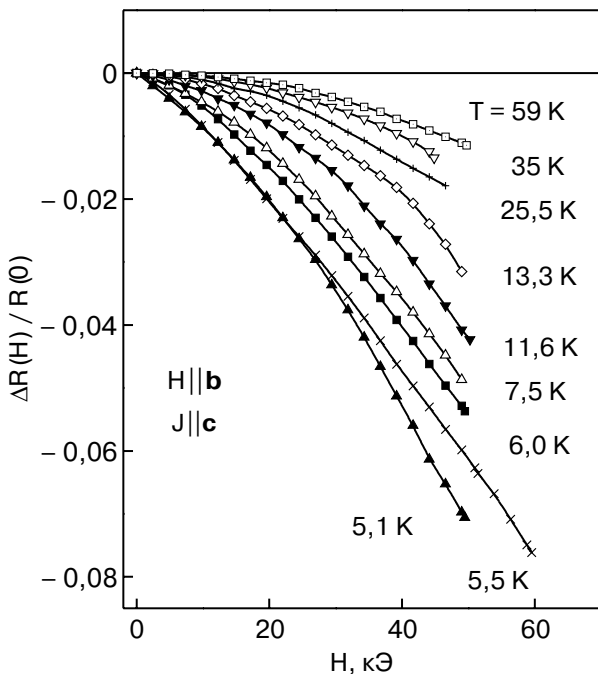


Рис. 6. Полевые зависимости МС при разных температурах при измерительном токе, перпендикулярном слоям CuO_2 . Магнитное поле направлено параллельно этим слоям вдоль кристаллографической оси **b**.

слабо влияет на прыжковую проводимость системы. Переход этих включений в сверхпроводящее состояние приводит к отклонению зависимости $\rho(T)$ от закона Мотта (1) и появлению довольно сильного отрицательного МС (см. подробное обсуждение в работе [5]).

Весьма вероятной причиной положительного МС при ПППДП является механизм [9], связанный со сжатием примесных волновых функций в магнитном поле. Для случая слабого магнитного поля ($L_H \gg L_c$, где $L_H = (\hbar/eH)^{1/2}$ – магнитная длина, L_c – длина локализации) величина МС согласно этому механизму определяется выражением [9]:

$$\ln \frac{R(H)}{R(0)} = t_1 \left(\frac{L_c}{L_H} \right)^4 \left(\frac{T_0}{T} \right)^{3/4}, \quad (2)$$

где $t_1 = 5/2016$, T_0 входит в вышеприведенное выражение (1) для $R(T)$ при ПППДП. Анализ данных показал, что этот механизм качественно (и даже полуколичественно) соответствует экспериментальным результатам. Действительно, мы нашли, что полевая зависимость положительного МС является квадратичной ($\ln [R(H)/R(0)] \propto H^2$, см. рис. 7) в соответствии с формулой (2). Понижение МС при достаточно высоких температурах (рис. 5) также согласуется с этим механизмом. Более того, измеренные значения $\Delta R(H)/R(0)$ соответствуют формуле (2) при $L_c \approx 2$ нм. Оценки величины L_c в

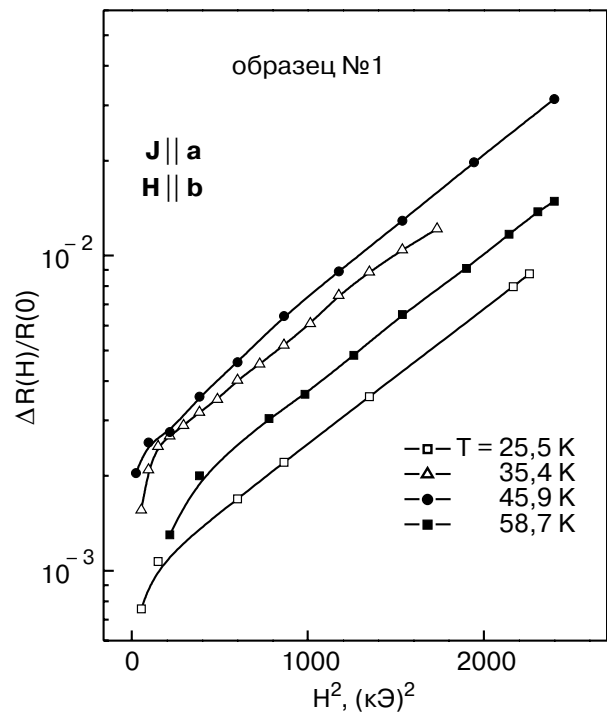


Рис. 7. Зависимость $\ln [R(H)/R(0)]$ от H^2 при различных температурах. Измерительный ток и магнитное поле параллельны слоям CuO_2 .

предыдущих работах [4,5] дали величину около 1 нм. Следует отметить, однако, что образцы, исследованные в настоящей работе, являются гораздо менее резистивными, чем, например, образцы в [5]. Поэтому длина локализации в них может быть несколько больше. По-видимому, именно это обстоятельство (т.е. достаточно большая длина локализации в исследованных образцах) и позволило обнаружить в настоящей работе положительное МС кристаллов $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ в диэлектрическом состоянии.

Таким образом, положительное МС, обнаруженное в настоящей работе, по ряду признаков соответствует механизму, указанному в [9]. С другой стороны, конкуренция двух механизмов МС (разного знака) в исследованных образцах препятствует вполне достоверному сравнению результатов с теорией положительного МС при ПППДП [9]. Нельзя также исключить, что положительное МС может быть связано с особенностями магнитной структуры $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$, например, с АФ доменами и «страйпами» (stripes) [13]. Эти возможности рассмотрены в работе [14] для АФ кристалла $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6,32}$, где для полей и токов, параллельных слоям CuO_2 , обнаружено положительное МС при $\mathbf{H} \perp \mathbf{J}$ и отрицательное при $\mathbf{H} \parallel \mathbf{J}$. Подобное поведение объяснимо, если предположить, что «страйпы» выстраиваются вдоль приложенного магнитного поля. Такая ориентация «страйпов» в поле возможна, если они обладают локальным ферромагнитным моментом [14]. Конечно, это объяснение нельзя считать окончательным, и нужна его дальнейшая экспериментальная проверка. Из работы [14] следует, что в АФ купратах возможна анизотропия МС, связанная с взаимной ориентацией тока и магнитного поля. Для слоев CuO_2 этот вид анизотропии может слабо зависеть от кристаллографической анизотропии внутри слоев. В описанном в настоящей статье исследовании монокристаллов $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ магнитное поле было всегда направлено перпендикулярно току. Мы планируем дальнейшие исследования кристаллов $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$, в которых намереваемся использовать и другие относительные ориентации направлений тока и магнитного поля для выяснения природы положительного МС в полях, параллельных слоям CuO_2 .

1. Tineke Thio, T.R. Thurston, N.W. Preyer, P.J. Picone, M.A. Kastner, H.P. Jenssen, D.R. Gabbe, C.Y. Chen, R. J. Birgeneau, and Amnon Aharony, *Phys. Rev.* **B38**, 905 (1988).
2. N.W. Preyer, R.J. Birgeneau, C.Y. Chen, D.R. Gabbe, H.P. Jenssen, M.A. Kastner, P.J. Picone, and Tineke Thio, *Phys. Rev.* **B39**, 11563 (1989).
3. M.A. Kastner, R.J. Birgeneau, G. Shirane, and Y. Endo, *Rev. Mod. Phys.* **70**, 797 (1998).

4. M.A. Kastner, R.J. Birgeneau, C.Y. Chen, Y.M. Chiang, D.R. Gabbe, H.P. Jenssen, T. Junk, C. J. Peters, P.J. Picone, Tineke Thio, T.R. Thurston, and H.L. Tuller, *Phys. Rev.* **B37**, 111 (1988).
5. Б.И. Белевцев, Н.В. Далакова, А.С. Панфилов, *ФНТ* **23**, 375 (1997).
6. M.F. Hundley, R.S. Kwok, S.-W. Cheong, J.D. Thompson, and Z. Fisk, *Physica* **C172**, 445 (1991).
7. Tineke Thio, C.Y. Chen, B.S. Freer, D.R. Gabbe, H.P. Jenssen, M.A. Kastner, P.J. Picone, N. W. Preyer, and R.J. Birgeneau, *Phys. Rev.* **B41**, 231 (1990).
8. S.-W. Cheong, Z. Fisk, J.O. Willis, S.E. Brown, J.D. Thompson, J.P. Remeika, A.S. Cooper, R.M. Aikin, D. Schiferl, and G. Gruner, *Solid State Commun.* **65**, 111 (1988).
9. Б.И. Шкловский, А.Л. Эфрос, *Электронные свойства легированных полупроводников*, Наука, Москва (1979).
10. А.О. Гоголин, А.С. Иоселевич, *ЖЭТФ* **98**, 681 (1990).
11. H.C. Montgomery, *J. Appl. Phys.* **42**, 2971 (1971).
12. *Phase Separation in Cuprate Superconductors*, E. Sigmund and K.A. Muller (eds.), Springer-Verlag, Heidelberg (1994).
13. E.W. Carlson, V.J. Emery, S.A. Kivelson, and D. Orgad, *Preprint cond-mat/0206217* (2002).
14. Yoichi Ando, A.N. Lavrov, and Kouji Segawa, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2813 (1999).

Anisotropy of hopping magnetoresistance in antiferromagnetic $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ single crystals

B.I. Belevtsev, N.V. Dalakova, A.V. Bondarenko, A.S. Panfilov, and I.S. Braude

The results on anisotropy of hopping conductivity (5–295 K) and magnetoresistance (MR) (5–55 K) of $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ antiferromagnetic single crystals with $T_N \approx 188$ K are reported. The resistance was measured by the Montgomery technique for different combinations of transport current and magnetic field directions with respect to the crystallographic axes. In the case where the field and transport current were parallel to the CuO_2 layers, a transition (at $T \approx 20$ K) from negative MR to positive MR was detected with a rise of temperature. In the fields perpendicular to the CuO_2 layers, only negative MR was observed. The nature of the positive MR is discussed. It is shown that the effect is more likely attributable to the orbital motion of charge carriers rather than to the interaction of their spins with the magnetic surroundings. The correlation is found between the value, magnetic-field and temperature behavior of the positive MR and the known Shklovsky-Efros model based on the allowance for compression of impurity wave functions of charge carriers in magnetic field.